

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (U6PT6)

(19)日本国特許庁 (J P)

(12)特 許 公 報 (B 2)

(11)特許番号

第 2 6 6 6 9 4 2 号

(45)発行日 平成 9 年 (1 9 9 7) 1 0 月 2 2 日

(24)登録日 平成 9 年 (1 9 9 7) 6 月 2 7 日

(51)Int.Cl.⁶

C04B 35/581

識別記号

庁内整理番号

F I

C04B 35/58

104

F

技術表示箇所

請求項の数 1 (全 7 頁)

| | | | |
|----------|------------------------------|----------|-----------------------------|
| (21)出願番号 | 特願昭 6 3 - 8 9 0 8 | (73)特許権者 | 9 9 9 9 9 9 9 9 9 株式会社東芝 |
| (22)出願日 | 昭和 6 3 年 (1 9 8 8) 1 月 1 9 日 | | 神奈川県川崎市幸区堀川町 7 2 番地 |
| (65)公開番号 | 特開平 1 - 1 8 3 4 6 9 | (72)発明者 | 加曾利 光男 |
| (43)公開日 | 平成 1 年 (1 9 8 9) 7 月 2 1 日 | | 神奈川県川崎市幸区小向東芝町 1 番地 |
| | | (72)発明者 | 株式会社東芝総合研究所内 |
| | | | 上野 文雄 |
| | | | 神奈川県川崎市幸区小向東芝町 1 番地 |
| | | (72)発明者 | 株式会社東芝総合研究所内 |
| | | | 堀口 昭宏 |
| | | | 神奈川県川崎市幸区小向東芝町 1 番地 |
| | | (74)代理人 | 株式会社東芝総合研究所内 |
| | | | 弁理士 鈴江 武彦 (外 2 名) |
| | | 審査官 | 後谷 陽一 |

最終頁に続く

(54)【発明の名称】窒化アルミニウム焼結体

1

(57)【特許請求の範囲】

【請求項 1】窒化アルミニウムを主成分とし、希土類元素化合物およびアルカリ土類元素化合物を希土類元素がアルカリ土類元素より多く含むように添加した状態で 1600℃以下の温度にて焼結した時に、副相として Ln-Al-O 系酸化物 (Ln; 希土類元素) および R-Ln-Al-O 系酸化物 (R; アルカリ土類元素、Ln; 希土類元素) が共存し、密度が 3.11g/cm³ 以上であることを特徴とする窒化アルミニウム焼結体。

【発明の詳細な説明】

【産業上の利用分野】

本発明は、窒化アルミニウム焼結体に関し、特に易焼結性の窒化アルミニウム焼結体に係る。

【従来の技術】

窒化アルミニウム焼結体 (AlN) は常温から高温まで

2

高強度性を保持し、かつ溶融金属に濡れず、さらに電気絶縁性が高く、高熱伝導性である等、多くの優れた特性を有することから新素材として注目されている。特に、近年、AlN 焼結体を放熱性基板に応用することが盛んに行われている。その結果、素原料や焼結技術の改善等により数年前までは熱伝導率が 100W/m・K が限界であったが、260W/m・K まで改良されるに至っている。

ところで、AlN 焼結体は通常、AlN 粉末を所望の方法により成形した後、焼結することにより製造されている。

10 焼結は常圧焼結法やホットプレス法により行なわれている。しかしながら、AlN は難焼結性物質であるため、常温焼結法を採用する場合には焼結助材を添加して焼結体を緻密化することが必要である。AlN の焼結助剤としては、アルカリ土類元素の化合物や希土類元素の化合物が知られている。これらの化合物は、焼結時において AlN

粉末原料中に不可避免的に混入される酸素と反応し、 $R-Al-O$ 系化合物 (R ; アルカリ土類元素) や $Ln-Al-O$ 系化合物 (Ln ; 希土類元素) を生成しつつ焼結体を緻密化させる。また、 AlN 粉末原料中に含まれる酸素は $Al-N-O$ 系化合物を生成したり、 AlN 粒子内に固溶して AlN 本来の高熱伝導性を低下させるが、上述した焼結助剤としてのアルカリ土類元素の化合物や希土類元素の化合物が酸素と反応し、この生成物を粒界相として固定化するため、前記焼結助剤は高熱伝導率化にも寄与する。

このように焼結助剤を AlN 粉末原料に添加することにより確かに AlN 焼結体の緻密化、高熱伝導率化を達成することが可能となるが、前記焼結助剤では $1700\sim 1900^{\circ}C$ の高温での焼結が必要である。 AlN 焼結体が広く利用されるためには、いくつかの課題が残されているが、その一つが焼結温度の低減化である。焼結温度の低減化は、低コストの観点から極めて重要である。特に、 AlN 焼結体を半導体実装基板に応用することを考えると、現在広く使用されているアルミナ基板との代替が可能になる。かかる状況では徹底的な低コスト化が必要である。

(発明が解決しようとする課題)

本発明は、前述した従来の課題を解決するためになされたもので、従来に比べてよい低い焼結温度 (特に $1600^{\circ}C$ 以下) で十分に緻密化され、かつ高熱伝導率の窒化アルミニウム焼結体を提供しようとするものである。

(課題を解決するための手段)

本発明に係る窒化アルミニウム焼結体 (AlN 焼結体) は、窒化アルミニウムを主成分とし、希土類元素化合物およびアルカリ土類元素化合物を希土類元素がアルカリ土類元素より多く含むように添加した状態で $1600^{\circ}C$ 以下の温度にて焼結した時に、副相として $Ln-Al-O$ 系酸化物 (Ln ; 希土類元素) および $R-Ln-Al-O$ 系酸化物 (R ; アルカリ土類元素、 Ln ; 希土類元素) が共存し、密度が $3.11g/cm^3$ 以上であることを特徴とする。

前記アルカリ土類元素としては、 Mg 、 Ca 、 Sr 、 Ba を挙げることができる。特に、 Ca 、 Sr 、 Ba が好ましい。

前記希土類元素としては、 Sc 、 Y 、 La 、 Ce 、 Sm 、 Eu 、 Tm 、 Tb 、 Dy 、 Nd 、 Gd 、 Pr 、 Ho 、 Er 、 Yb 等を挙げることができ、特に Y 、 La 、 Ce が好ましい。

本発明に係る AlN 焼結体における AlN 結晶粒子の構成比は、全体の $80\sim 99.99$ 重量%にすることが望ましい。

次に、前述した AlN 焼結体を得るための製造方法を詳細に説明する。

まず、 AlN 粉末に希土類元素化合物およびアルカリ元素化合物を希土類元素がアルカリ土類元素より多く含まれるように添加した後、ボールミル等を用いて粉碎、混合して原料を調製する。ただし、焼結法として常圧焼結法を採用する場合には前記ボールミル等で粉碎、混合したものにさらにバインダを加え、混練、造粒、整粒を行って原料を調製する。

前記 AlN 粉末としては、酸素が $0.01\sim 7$ 重量%含むも

のをを用いることが好ましい。また、前記 AlN 粉末としては平均粒径 $4\mu m$ 以下、低温焼結のためには $2\mu m$ 以下のものをを用いることが好ましい。

前記アルカリ元素化合物としては、例えば Mg 、 Ca 、 Sr 、 Ba の酸化物、フッ化物、炭化物または焼結により酸化物、フッ化物または炭化物となる化合物を用いることができ、これらは単独でも2種以上の混合物で使用してもよい。

前記希土類元素化合物としては、例えば Sc 、 Y 、 La 、 Ce 、 Sm 、 Eu 、 Tm 、 Tb 、 Dy 、 Nd 、 Gd 、 Pr 、 Ho 、 Er 、 Yb の酸化物、フッ化物、炭化物または焼結により酸化物、フッ化物または炭化物となる化合物を用いることができ、これらは単独でも2種以上の混合物で使用してもよい。

前記アルカリ元素化合物および希土類元素化合物は、前記 AlN 粉末と同様、平均粒径 $4\mu m$ 以下、低温焼結のためには $2\mu m$ 以下のものをを用いることが好ましい。

前記アルカリ元素化合物と前記希土類元素化合物の AlN 粉末に対する添加割合は重量比にて $Ln/(L+8)$ が 0.5 を越え、 0.9 以下にすることにより、後述する成形、 $1600^{\circ}C$ 以下での焼結後において副相として $Ln-Al-O$ 系酸化物および $R-Ln-Al-O$ 系酸化物が共存した AlN 焼結体を製造することが可能になる。すなわち、 R 化合物として CaO を、 Ln 化合物として Y_2O_3 をそれぞれ用いて AlN 粉末に添加する際、 Y 、 Ca が前記重量比を満たす範囲することによって、 AlN 以外の構成相 (副相) として少なくとも $YAlO_3$ や $Y_3Al_5O_{12}$ と $CaYAlO_4$ や $CaYAlO$ 系未知相 ($CaYAl_3O_7$ と推定される) とが共存される。

前記アルカリ元素化合物および前記希土類元素化合物の AlN 粉末に対する添加量は、それぞれ酸化物に換算して合計量で $0.01\sim 20$ 重量%の範囲にすることが好ましい。これは、次のような理由によるものである。前記各化合物の添加量を 0.01 重量%未満にすると、副相として $Ln-Al-O$ 系酸化物および $R-Ln-Al-O$ 系酸化物が共存させることが困難になる。一方、前記各化合物の添加量が 20 重量%を越えると耐熱性、機械的強度および熱伝導率の低下を招く恐れがある。より好ましいアルカリ元素化合物および希土類元素化合物の添加量は、 $0.01\sim 17$ 重量%である。

次いで、前記バインダを含む原料を金型、静水圧またはシート成形等の手段より成形した後、成形体を N_2 ガス気流中にて加熱してバインダを除去する。つづいて、成形体を黒鉛または窒化アルミニウムからなる容器にセットし、 N_2 ガス雰囲気中にて $1600^{\circ}C$ 以下で常圧焼結を行う。一方、ホットプレス焼結の場合には、前記ボールミルで粉碎、混合して調製した原料を前述したと同様な温度でホットプレスを行う。

上述した方法により製造された AlN 焼結体は、粉末X線回折により AlN 以外の構成相 (副相) として少なくとも $Ln-Al-O$ 系酸化物と $R-Ln-Al-O$ 系酸化物の共存が同定される。また、 AlN 粉末中の酸素量が多く、かつ

前記 R 化合物および前記 Ln 化合物の添加量が少ない組成の原料を用いると、前記構成相の他に Al-N-O 系化合物が生成される場合がある。

(作用)

本発明に係わる窒化アルミニウム焼結体は、窒化アルミニウムを主成分とし、希土類元素化合物およびアルカリ土類元素化合物を希土類元素がアルカリ土類元素より多く含むように添加した状態で 1600℃ 以下の温度にて焼結した時に、副相として Ln-Al-O 系酸化物 (Ln: 希土類元素) および R-Ln-Al-O 系酸化物 (R: アルカリ土類元素、Ln: 希土類元素) が共存し、密度が 3.11g/cm³ 以上である。このような窒化アルミニウム焼結体は、緻密で高強度であると共に、優れた高熱伝導性を有する。

(実施例)

以下、本発明の実施例を詳細に説明する。

(実施例 1)

まず、不純物としての酸素を 0.86 重量% 含有し、平均粒径が 1.8 μm の AlN 粉末に平均粒径 0.8 μm の Y₂O₃ および CaCO₃ の混合粉末 (混合重量比率; Y₂O₃/CaO の換算で 3:1) を 3 重量% 添加し、ボールミルを用いて解粉、混合して原料を調製した。つづいて、この原料にアクリル系

バインダを 5 重量% 添加して造粒した後、500kg/cm² の圧力でプレス成形して約 30cm×30cm×8cm の寸法の圧粉体とした。

(実施例 2～10)

原料として下記第 1 表に示す AlN 粉末、添加物である混合粉末 (ただし、CaO は CaCO₃ の形で添加) からなるも

のをを用い、同第 1 表に示す条件で焼結した以外、実施例 1 と同様な方法により 9 種の AlN 焼結体を製造した。

(比較例 1～6)

原料として下記第 1 表に示す AlN 粉末、添加物である混合粉末 (ただし、CaO は CaCO₃ の形で添加) からなるものをを用い、同第 1 表に示す条件で焼結した以外、実施例 1 と同様な方法により 6 種の AlN 焼結体を製造した。

得られた実施例 1～10 および比較例 1～6 の AlN 焼結体の密度を測定した。また、各 AlN 焼結体を研削して直径 10mm、厚さ 3.5mm の円板を作製し、これらを試験片としてレーザフラッシュ法により室温での熱伝導率を測定した、さらに、粉末 X 線回折法により各 AlN 焼結体の AlN 以外の構成相を同定した。これらの結果を下記第 1 表 (つづき) に示す。なお、第 1 表 (つづき) 中の未知相とは Ca-Y-Al-O 系複合酸化物であり、その組成は現時点では CaYAl₃O₇ と推定される。

また、添加物である Y₂O₃、CaCO₃ の CaO/(Y₂O₃+CaO) の重量比を変化させた時に得られた AlN 焼結体の密度、熱伝導率の関係を第 1 図に示す。なお、第 1 図中の □ は焼結条件を 1600℃ に設定した AlN 焼結体、● は焼結条件を 1700℃ に設定した AlN 焼結体、○ は焼結条件を 1800℃ に設定した AlN 焼結体、をそれぞれ示す。添加物である Y₂O₃、CaCO₃ の CaO/(Y₂O₃+CaO) の重量比を変化させ、焼結温度を 1600℃ および 1800℃ に設定することにより得られた各 AlN 焼結体における AlN 以外の構成相を第 2 図および第 3 図にそれぞれ示す。なお、第 4 図には添加物として Y₂O₃/CaO=1:1 の重量比率の Y₂O₃、CaCO₃ を用い、これを AlN 粉末に 3 重量% 添加し、1800℃ で焼結した以外、実施例 1 と同様な方法により得られた AlN 焼結体の粉末 X 線回折スペクトルを示す。第 4 図中の ○ は AlN の回折ピークを示す。

第

1

表

| | Al 粉末 | | 添加物 | | | 焼結条件 | | 焼結体の特性 | | |
|-------|-------------|------------------|--|------------------|------------------|-----------|------------|----------------------------|---|---|
| | 酸素 (wt%) | 平均 粒径 (μm) | 組成 (重量比) | 平均 粒径 (μm) | 添加 量 (wt%) | 温度 (℃) | 時間 (hr) | 密度 (gcm ⁻³) | 熱伝導率 (Wm ⁻¹ K ⁻¹) | AlN 以外の構成相 |
| 実施例 1 | 0.86 | 1.8 | Y ₂ O ₃ /CaO=3:1 | 0.8 | 3 | 1600 | 2 | 3.15 | 105 | YAlO ₃ 、Y ₃ Al ₅ O ₁₂ 、未知相 |
| 実施例 2 | 0.86 | 1.8 | Y ₂ O ₃ /CaO=4:1 | 0.8 | 3 | 1600 | 2 | 3.13 | 104 | YAlO ₃ 、Y ₃ Al ₅ O ₁₂ 、未知相 |
| 実施例 3 | 0.86 | 1.8 | Y ₂ O ₃ /CaO=7:3 | 0.8 | 3 | 1600 | 2 | 3.11 | 100 | YAlO ₃ 、Y ₃ Al ₅ O ₁₂ 、未知相 |
| 実施例 4 | 0.86 | 1.8 | Y ₂ O ₃ /CaO=3:1 | 0.8 | 1 | 1600 | 8 | 3.26 | 122 | Y ₃ Al ₅ O ₁₂ 、未知相 |
| 実施例 5 | 0.86 | 1.8 | Y ₂ O ₃ /CaO=3:1 | 0.8 | 1 | 1600 | 24 | 3.26 | 135 | Y ₃ Al ₅ O ₁₂ 、未知相 |
| 実施例 6 | 0.86 | 1.8 | Y ₂ O ₃ /CaO=3:1 | 0.8 | 3 | 1600 | 8 | 3.27 | 139 | YAlO ₃ 、CaYAlO ₄ 、Y ₄ Al ₂ O ₉ 、未知相 |
| 実施例 7 | 0.86 | 1.8 | Y ₂ O ₃ /CaO=3:1 | 0.8 | 3 | 1600 | 24 | 3.29 | 155 | YAlO ₃ 、CaYAlO ₄ 、未知相 |
| 実施例 8 | 0.86 | 1.8 | Y ₂ O ₃ /CaO=3:1 | 0.8 | 5 | 1600 | 8 | 3.17 | 123 | Y ₄ Al ₂ O ₉ 、CaYAlO ₄ 、未知相 |
| 実施例 9 | 0.86 | 1.8 | Y ₂ O ₃ /CaO=3:1 | 0.8 | 5 | 1600 | 24 | 3.29 | 133 | Y ₄ Al ₂ O ₉ 、CaYAlO ₄ 、未知相、Y ₂ O ₃ |

| | Al 粉末 | | 添加物 | | | 焼結条件 | | 焼結体の特性 | | |
|-------|-------------|-------------------------------|---------------------------------------|-------------------------------|------------------|------------------------------|------------|-----------------------------|---|--|
| | 酸素 (wt%) | 平均 粒径 (μm) | 組成 (重量比) | 平均 粒径 (μm) | 添加 量 (wt%) | 温度 ($^{\circ}\text{C}$) | 時間 (hr) | 密度 (gcm^{-3}) | 熱伝導率 ($\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$) | AlN以外の構成相 |
| 実施例10 | 0.86 | 1.8 | $\text{Y}_2\text{O}_3/\text{CaO}=3:1$ | 0.8 | 7 | 1600 | 24 | 3.30 | 127 | $\text{Y}_4\text{Al}_2\text{O}_9$ 、 CaYAlO_4 、未知相、 Y_2O_3 |
| 比較例 1 | 0.86 | 1.8 | CaCO_3 | 0.8 | 5.36 | 1600 | 2 | 2.59 | 32 | $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{14}\text{O}_{33}$ 、 CaAl_2O_7 |
| 比較例 2 | 0.86 | 1.8 | CaCO_3 | 0.8 | 5.36 | 1700 | 2 | 3.07 | 101 | CaAl_2O_4 |
| 比較例 3 | 0.86 | 1.8 | CaCO_3 | 0.8 | 5.36 | 1800 | 2 | 3.13 | 117 | CaAl_2O_4 、 CaAl_4O_7 |
| 比較例 4 | 0.86 | 1.8 | Y_2O_3 | 0.8 | 3 | 1600 | 2 | 2.36 | 30 | YAlO_3 、 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ |
| 比較例 5 | 0.86 | 1.8 | Y_2O_3 | 0.8 | 3 | 1700 | 2 | 3.17 | 112 | YAlO_3 、 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ |
| 比較例 6 | 0.86 | 1.8 | Y_2O_3 | 0.8 | 3 | 1800 | 2 | 3.31 | 149 | YAlO_3 、 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ |

前記第1表および第1図、第2図から明らかなように1600 $^{\circ}\text{C}$ 以下の焼結によりY-Al-O系複合酸化物とCa-Y-Al-O系複合酸化物が副相として共存する実施例1~10のAlN焼結体は、焼結温度が同温度(1600 $^{\circ}\text{C}$)でCa-Y-Al-O系複合酸化物が副相として含む比較例1のAlN焼結体、焼結温度が同温度(1600 $^{\circ}\text{C}$)でY-Al-O系複合酸化物が副相として含む比較例4のAlN焼結体に比べて密度が3.11 g/cm^3 以上と緻密化され、かつ高い熱伝導率を有することがわかる。

第

2

(実施例11~27)

原料として下記第2表に示すAlN粉末、添加物である混合粉末(ただし、CaOは CaCO_3 の形で添加)からなるものを用い、同第2表に示す条件で焼結した以外、実施例1と同様な方法により17種のAlN焼結体を製造した。

得られた実施例11~27のAlN焼結体について実施例1と同様、密度、レーザフラッシュ法による室温での熱伝導率および粉末X線回折法によるAlN以外の構成相を同定した。これらの結果を下記第2表(つづき)に示す。

表

| | Al 粉末 | | 添加物 | | | 焼結条件 | | 焼結体の特性 | | |
|-------|-------------|-------------------------------|--|---------------------------|------------------|------------------------------|------------|-----------------------------|---|--|
| | 酸素 (wt%) | 平均 粒径 (μm) | 組成 (重量比) | 平均粒径 (μm) | 添加 量 (wt%) | 温度 ($^{\circ}\text{C}$) | 時間 (hr) | 密度 (gcm^{-3}) | 熱伝導率 ($\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$) | AlN以外の構成相 |
| 実施例11 | 1.6 | 0.9 | $\text{La}_2\text{O}_3:\text{CaO}=3:1$ | 0.8~1.2 | 3 | 1600 | 4 | 3.32 | 183 | LaAlO_4 、 CaLaAlO_4 |
| 実施例12 | 1.6 | 0.9 | $\text{CeO}_2:\text{CaO}=3:1$ | 0.8~1.2 | 3 | 1600 | 4 | 3.33 | 181 | CeAlO_4 、未知相 |
| 実施例13 | 1.6 | 0.9 | $\text{Pr}_2\text{O}_3:\text{CaO}=3:1$ | 0.8~1.0 | 3 | 1600 | 4 | 3.33 | 182 | PrAlO_4 、 CaPrAlO_4 |
| 実施例14 | 1.6 | 0.9 | $\text{Nd}_2\text{O}_3:\text{CaO}=3:1$ | 0.8~1.2 | 3 | 1600 | 4 | 3.33 | 180 | NdAlO_4 、 CaNdAlO_4 |
| 実施例15 | 1.6 | 0.9 | $\text{Nd}_2\text{O}_3:\text{SrO}=3:1$ | 1.0~1.2 | 3 | 1600 | 4 | 3.33 | 175 | NdAlO_4 、 SrNdAlO_4 |
| 実施例16 | 1.6 | 0.9 | $\text{Sm}_2\text{O}_3:\text{CaO}=3:1$ | 0.8~1.0 | 3 | 1600 | 4 | 3.33 | 178 | SmAlO_4 、 CaSmAlO_4 |
| 実施例17 | 1.6 | 0.9 | $\text{Sm}_2\text{O}_3:\text{SrO}=3:1$ | 1.0 | 3 | 1600 | 4 | 3.34 | 172 | SmAlO_4 、 SrSmAlO_4 |
| 実施例18 | 1.6 | 0.9 | $\text{Gd}_2\text{O}_3:\text{CaO}=3:1$ | 0.8~1.2 | 3 | 1600 | 4 | 3.34 | 175 | GdAlO_4 、 CaGdAlO_4 |
| 実施例19 | 1.6 | 0.9 | $\text{Dy}_2\text{O}_3:\text{CaO}=3:1$ | 0.8~1.0 | 3 | 1600 | 4 | 3.33 | 175 | DyAlO_4 、 CaDyAlO_4 |
| 実施例20 | 1.6 | 0.9 | $\text{Ho}_2\text{O}_3:\text{CaO}=3:1$ | 0.8~1.2 | 3 | 1600 | 4 | 3.34 | 176 | HoAlO_4 、 CaHoAlO_4 |
| 実施例21 | 1.6 | 0.9 | $\text{Er}_2\text{O}_3:\text{CaO}=3:1$ | 0.8~1.1 | 3 | 1600 | 4 | 3.34 | 172 | ErAlO_4 、 CaErAlO_4 |
| 実施例22 | 1.6 | 0.9 | $\text{Eu}_2\text{O}_3:\text{CaO}=3:1$ | 0.8~1.2 | 3 | 1600 | 4 | 3.33 | 173 | EuAlO_4 、 CaEuAlO_4 |
| 実施例23 | 1.6 | 0.9 | $\text{YF}_3:\text{CaO}=3:1$ | 0.8~1.2 | 3 | 1600 | 4 | 3.31 | 175 | YAlO_4 、 CaYAlO_4 、未知相 |
| 実施例24 | 1.6 | 0.9 | $\text{YF}_3:\text{BaO}=3:1$ | 0.9~1.2 | 3 | 1600 | 4 | 3.32 | 170 | YAlO_4 、未知相 |

| | Al粉末 | | 添加物 | | | 焼結条件 | | 焼結体の特性 | | |
|-------|-------------|-------------------------------|---------------------------------------|---------------------------|------------------|------------------------------|------------|-----------------------------|---|---|
| | 酸素 (wt%) | 平均 粒径 (μm) | 組成 (重量比) | 平均粒径 (μm) | 添加 量 (wt%) | 温度 ($^{\circ}\text{C}$) | 時間 (hr) | 密度 (gcm^{-3}) | 熱伝導率 ($\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$) | AlN以外の構成相 |
| 実施例25 | 1.6 | 0.9 | $\text{YF}_3:\text{CaO}=3:1$ | 0.8~1.2 | 1 | 1550 | 24 | 3.29 | 178 | $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 、未知相 |
| 実施例26 | 1.6 | 0.9 | $\text{YF}_3:\text{CaO}=3:1$ | 0.8~1.2 | 0.1 | 1550 | 24 | 3.20 | 151 | $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 、未知相 |
| 実施例27 | 1.6 | 0.9 | $\text{Ca}_2\text{C}:\text{YF}_3=1:3$ | 0.8~1.2 | 3 | 1600 | 4 | 3.29 | 165 | YAlO_3 、 CaAlO_4 、未知相 |

前記第2表(つづき)から明らかなように希土類元素化合物およびアルカリ土類元素化合物として Y_2O_3 、 CaCO_3 以外のものを用い、1600 $^{\circ}\text{C}$ 以下の焼結した実施例11~27のAlN焼結体は、 $\text{Ln}-\text{Al}-\text{O}$ 系複合酸化物(Ln;希土類元素)と $\text{R}-\text{Ln}-\text{Al}-\text{O}$ 系複合酸化物(Ln;希土類元素、R;アルカリ土類元素)が副相として共存し、密度が3.11 g/cm^3 以上と緻密化され、かつ高い熱伝導率を有することがわかる。

(発明の効果)

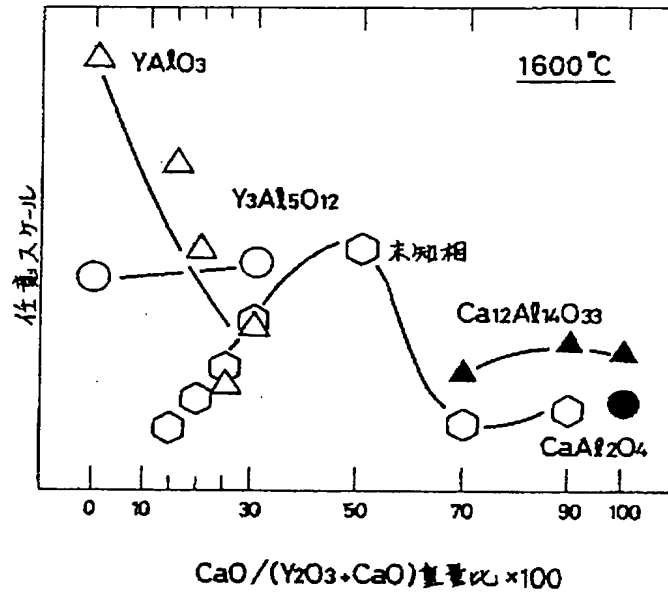
以上詳述したように本発明によれば、従来に比べてより低い焼結温度(特に1600 $^{\circ}\text{C}$ 以下)で密度が3.11 g/cm^3 以上と緻密化され、かつ高い熱伝導率を有し、半導体実装用基板等に有用な窒化アルミニウム焼結体を提供する

ことができる。

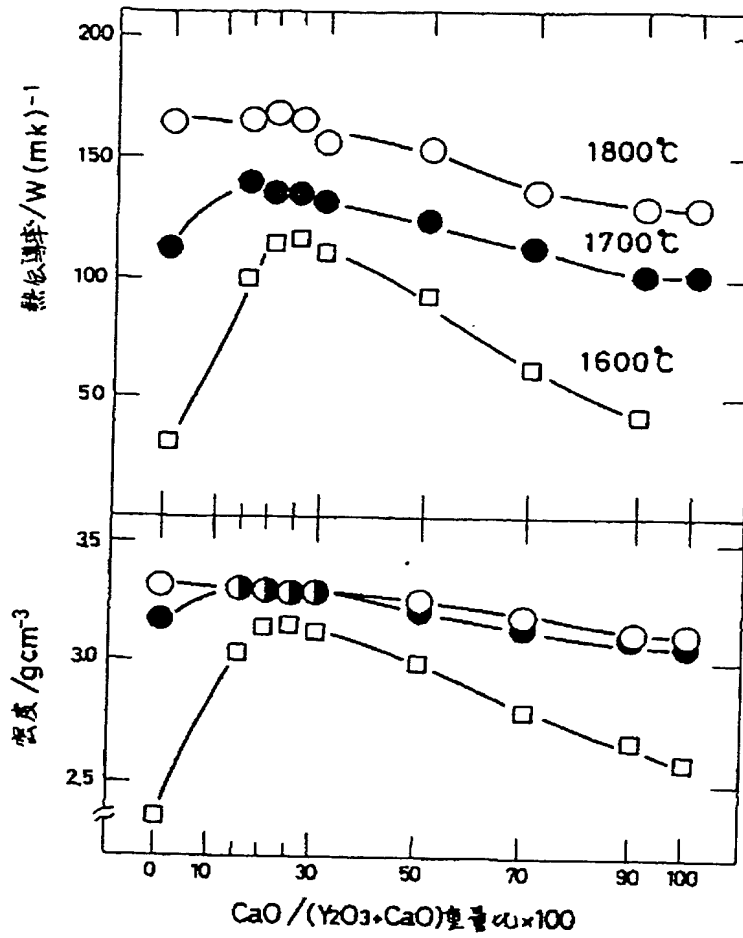
【図面の簡単な説明】

第1図は、添加物である Y_2O_3 、 CaCO_3 の $\text{CaO}/(\text{Y}_2\text{O}_3+\text{CaO})$ の重量比を変化させた時に得られたAlN焼結体の密度、熱伝導率の関係を示す特性図、第2図および第3図は添加物である Y_2O_3 、 CaCO_3 の $\text{CaO}/(\text{Y}_2\text{O}_3+\text{CaO})$ の重量比を変化させ、焼結温度を1600 $^{\circ}\text{C}$ および1800 $^{\circ}\text{C}$ に設定することにより得られた各AlN焼結体におけるAlN以外の構成相を示す図、第4図は添加物として $\text{Y}_2\text{O}_3/\text{CaO}=1:1$ の重量比率の Y_2O_3 、 CaCO_3 を用い、これをAlN粉末に3重量%添加し、1800 $^{\circ}\text{C}$ で焼結して得られたAlN焼結体の粉末X線回折スペクトル図である。

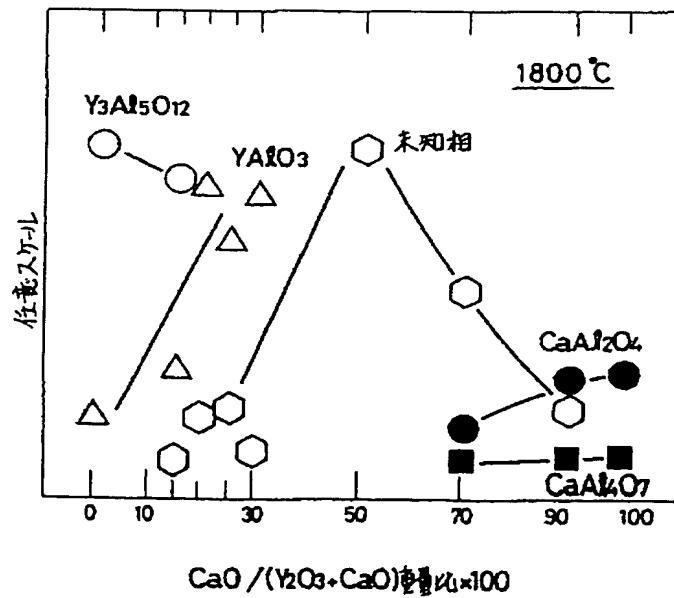
【第2図】



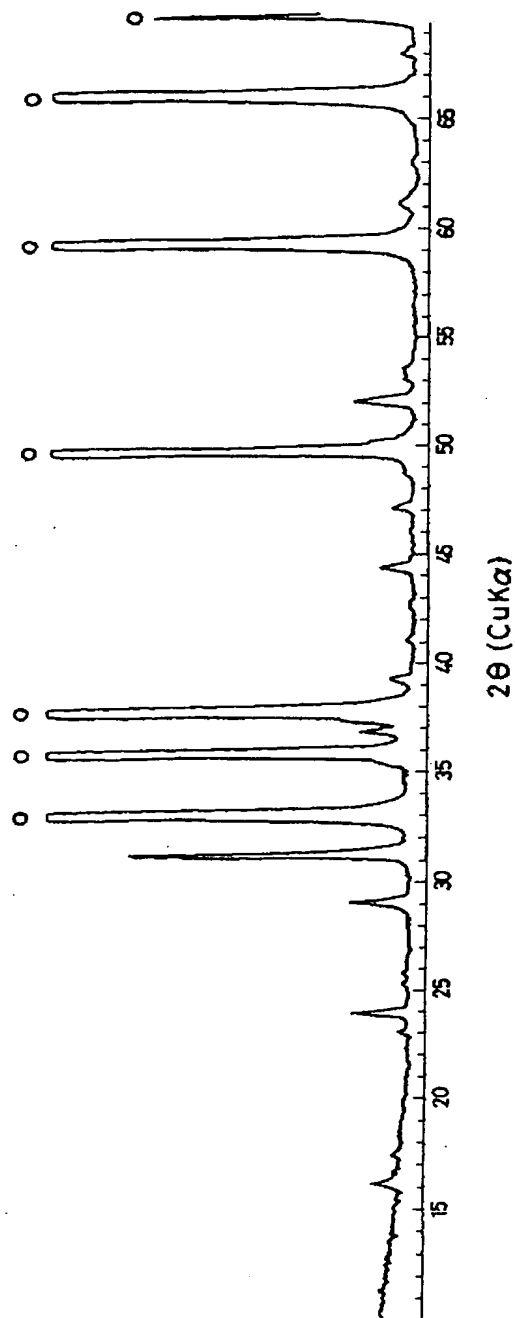
〔第1図〕



〔第3図〕



〔第 4 図〕



フロントページの続き

- (72)発明者 柘植 章彦
神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地
株式会社東芝総合研究所内
- (56)参考文献 特開 昭61-201671 (JP, A
)
特開 昭63-25278 (JP, A)

THIS PAGE BLANK (USPTO)